

고온 초전도체 $Y_{1-x}Yb_xBa_2Cu_3F_{y_1}O_{y_2}$ 의 수송임계전류밀도의 자기장방향 의존성

12-6-13

Dependence of Transport Critical Current Density of High T_c Superconductor $Y_{1-x}Yb_xBa_2Cu_3F_{y_1}O_{y_2}$ on the Magnetic Field Direction

김재욱*, 김채옥**

(Jae-Wook Kim* and Chae-Ok Kim**)

Abstract

The dependence of transport critical current density (J_c) and Lorentz force (F_L) of $Y_{1-x}Yb_xBa_2Cu_3F_{y_1}O_{y_2}$ on the magnetic field direction have been investigated. When the YBF_3 mole fraction became larger, while the values of the transport critical current density were in the range of 82 ~ 340 A/cm², J_c were rapidly decreased as the magnetic field increased. The dependence of J_c on the angle (θ) at the external field of 60 Oe showed a maximum at 0° and 180° for both the FCz and ZFCz cases. The Lorentz force appeared to depend on θ and was at its maximum at 90° for both the FCe (FCz) and ZFCe (ZFCz) cases.

Key Words(중요용어) : Transport Critical Current Density(J_c : 수송임계전류밀도), Lorentz Force(로렌츠힘), Field Cooled(FC : 자기장하에서 냉각), Zero Field Cooled(ZFC : 자기장이 인가되지 않은 상태에서 냉각)

1. 서 론

단결정 초전도체와 입자(grain)들이 c-축으로 정렬된 초전도체에서 자기장 방향(수평, 수직)에 따른 임계전류밀도(J_c)에 대한 연구가 보고된 바 있으며 [1~3] 이 값들은 산업에 응용될 수 있을 정도로 높다. 하지만 산화물 고온 초전도체가 실제 응용되기 위해 가공되는 형태는 다결정 구조이므로 높은 이방성과 입자들 사이의 계면이 약한 연결(weak link)로 되어 있다. 그래서 77K의 온도에서 수 mT 정도의 자기장만 걸어 주어도 계면에서의 초전도성이 완전히 파괴되기 때문에 응용하는데 어려움이 뒤따른다. 이를 개선시키기 위해 조직의 배향화와 치밀화를 기하고 제2상등을 제거하여 임계전류밀도를 향상시키는 연구가 진행되 나 있다[4, 5]. 또한 로렌츠힘

에 관계하는 자속의 이동을 억제하는 자속 고정점을 초전도 내부에 균일하게 분산시킴으로서 높은 자기장 하에서도 임계전류밀도의 감소를 방지할 수 있다고 하였다[6].

일반적으로 외부에서 가해진 자기장(H_a)내에 있는 반지름이 a인 원통형 초전도체에 전류 i가 흐를 때 시편의 표면에는 I에 의한 유도 자기장(H_i)과 반자성 차폐전류에 의한 자기장(H_m)의 벡터의 합으로 전체 자기장(H)이 작용하고 표면의 위치에 따라 자기장의 크기가 달라지는데 가장 큰 자기장이 그 시편의 임계 전류밀도를 결정하게 된다[7]. 따라서 자기장의 어떤 최대값을 유지하는 만큼의 전류만이 시편에 흐를 수 있으므로 임계전류밀도가 자기장 방향에 의존한다는 것을 예측할 수 있다.

본 연구에서는 위에서 언급한 방법과는 달리 고상 반응법으로 제작하여도 불소화물 형태로 불소이온이 주입되는 경우 이들이 산소위치와 격자 위치에 들어 가서 산소의 결핍을 막아주고 임계면에서 피닝 센터 역할을 한다면 임계전류밀도(J_c)의 향상시킬 수 있다고 보았다. 그래서 지금까지 불소화물 형태로써 제작된바 없는 YbF_3 형태로써 치환된 고온 초전도체 $Y_{1-x}Yb_xBa_2Cu_3F_{y_1}O_{y_2}$ 시료를 제작하여 불소 주입

* : 특허청 심사4국 전자과
(대전시 서구 둔산동 920, Fax : 042-472-3473,
E-mail : jwokim@hanmail.net)

** : 한양대학교 자연과학대학 물리학과
1998년 11월 26일 접수, 1999년 6월 4일 심사완료

및 인가된 자기장 방향에 따른 수송 임계전류밀도 (J_c)와 자기장 각도에 따른 로렌츠힘의 의존성에 대하여 알아보았다.

2. 실험 방법

실험에서 사용된 시료들은 보통 사용되는 고상반응법(solid state reaction method)으로 제조하였다. 우선 분말상태로 순도가 각각 99.99%인 $Y_2O_3 + YbF_3$, $BaCO_3$ 와 CuO 의 조성비를 1:2:3의 비율로 평량하여 혼합한다. 이 혼합된 시료를 마노 막자사발에 넣고 에틸알코올을 혼합매체로 사용하여 분쇄한 후 200 mesh 체로 걸러 매우 고운분말을 얻었다. 이 분말에 P.V.A(polyvinyl alcohol) binder를 시료질량의 6wt%만큼 넣은 후 다시 잘 혼합하였다. 그 다음 이 시료를 오븐속에서 100 °C로 2시간 유지하여 binder내의 수분을 모두 증발시킨 후 $5 \times 10^2 \text{ kgf/cm}^2$ 의 압력으로 3분간 압축하여 직경 1.5 mm인 원판형으로 만들어 튜브형 전기로에서 하소(calcining)와 소결(sintering)을 하였다.

상온에서 전기로의 온도를 분당 5 °C의 비율로 930 °C까지 시간당 150 °C로 온도를 올려 열처리하고, 산소 분위기에서 910 °C(± 5 °C)의 온도로 14시간 열처리한 후 100 °C/h의 속도로 온도를 내리면서 800 °C(± 5 °C)와 700 °C(± 5 °C)에서 각각 3시간 그리고 500 °C(± 5 °C)에서 6시간 동안 열처리 후 다시 100 °C/h의 속도로 냉각시켜 200 °C에서 quenching하였다. 모든 과정에서 산소의 양은 600 cc/min로 일정하게 흘러 주었다.

수송 임계전류밀도(J_c)의 측정은 4 단자 방법을 이용하였으며 Fig. 1에 나타내었다. 시편의 양끝 단자를 통해 전류를 흘려주고 가운데 두 단자로부터 나오는 전압을 측정하였다. 이때 시편의 가운데 두 단자로부터 측정되는 전압이 1 μ V/cm가 될 때의 흐르는 전류를 임계전류(I_c)로서 정의하며, 이때의 전류값과 시편의 단면적으로부터 수송 임계전류밀도를 결정하였다. 또한 Helmholtz coil을 이용하여 자기장을 인가하였고, 이 자기장을 시편에 흐르는 전류의 방향과, 0°~360°로 변화시키면서 10° 간격으로 수송 임계전류밀도를 측정하였다. 수송 임계전류밀도의 측정은 각각의 각도에서 FC(field cooling)한 경우를 $J_c(\text{FCe})$ 그리고 ZFC(Zero Field-Cooling)한 경우를 $J_c(\text{ZFCe})$ 로 표현하였다. 0°에서 냉각시킨 후 각도를 바꾸어 주면서 수송 임계전류밀도를 측정한 경우를 $J_c(\text{FCz})$ 와 $J_c(\text{ZFCz})$ 로 나타내었다. 이와 같이 수송 임계전류밀도의 측정은 4가지 경우로 구분

하였고 모두 77K의 온도에서 측정하였다.

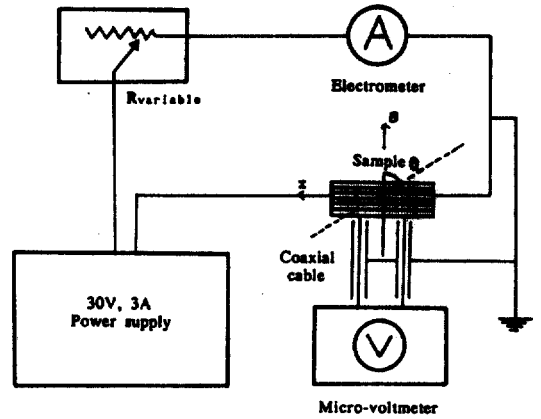


그림 1. 수송 임계전류밀도 측정 블록도.
Fig. 1. Block diagram for the transport critical current measurement.

3. 실험결과 및 고찰

Fig. 2에는 77K의 온도에서 YbF_3 농도에 따른 수송 임계전류밀도의 변화를 나타내었다. 수송 임계전류밀도(J_c)는 치환량의 변화에 따라 82~340 A/cm² 범위에 있었으며, 이 값들은 1-2-3 상인 경우와 1-2-3 상에 최외곽 자성이온들이 치환된 시료들[8, 9] 보다 높았다. 이것은 초전도체 시료의 낱알들이 성장된 것과 일방향 형태로 비교적 잘 정렬된 것[10] 때문에 높아진 것으로 생각된다.

Fig. 3에는 77K의 온도에서 자기장의 변화에 따른 수송 임계전류밀도의 변화를 나타내었다. 여기서 자기장은 Helmholtz coil을 이용하여 가한 전류를 환산한 값이다. 자기장을 증가시키에 따라 모든 시료에 대해서 수송 임계전류밀도의 값은 대체로 급격히 감소하였다. 자기장의 값이 수 Oe 이하인 경우에서의 임계값들은 우수하며 자기장 의존도를 거의 보이지 않는데 이는 약한 연결을 통한 낱알간의 결합이 강하여 초전도체내로 자속의 침투가 거의 일어나지 않기 때문이다. 그러나 수십 Oe에서 대략 200 Oe정도의 자기장에서는 급격한 임계값의 감소를 보이다가 차츰 일정해 지는데 이것은 약한 연결속으로 자속이 침투함에 따라 부분적으로 낱알간의 결합이 깨어지기 때문이다. 또한 200 Oe이상의 자기장에서는 낱알간의 결합은 모두 깨어지고 자기장이 낱알의 낮은 임계자기장 H_{c1} 보다 커져 비로소 자속이 낱알내로 침투되므로 이에 따라 임계값이 더욱 감소한다. 이와같

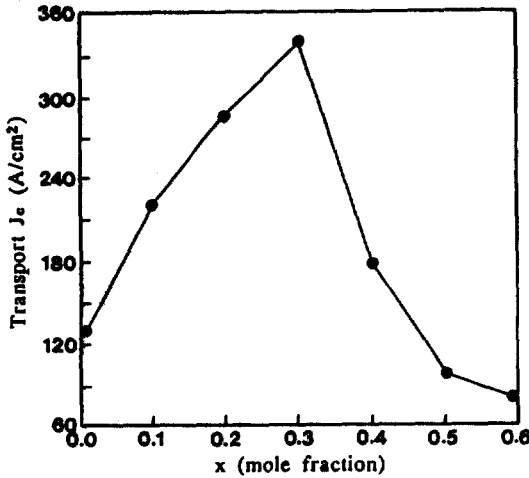


그림 2. 77K의 온도에서 $Y_{1-x}Yb_xBa_2Cu_3F_{y1}O_{y2}$ 계의 YbF_3 농도에 따른 수송 임계전류밀도의 변화.

Fig. 2. The variation of transport critical current densities at 77K as a function of YbF_3 concentration x in $Y_{1-x}Yb_xBa_2Cu_3F_{y1}O_{y2}$.

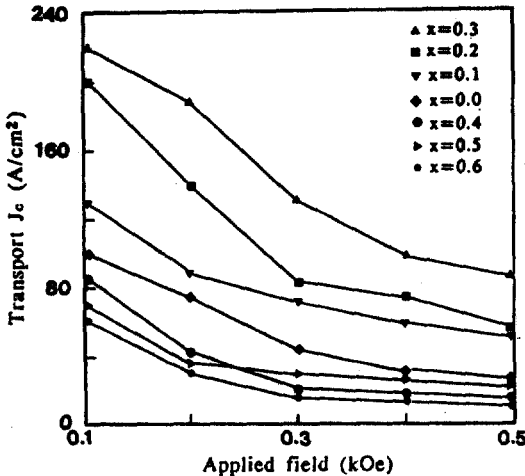


그림 3. 77K의 온도에서 $Y_{1-x}Yb_xBa_2Cu_3F_{y1}O_{y2}$ 계의 인가 자기장의 변화에 따른 수송 임계전류밀도의 변화.

Fig. 3. The variation of transport critical current densities at 77K versus applied magnetic field for $Y_{1-x}Yb_xBa_2Cu_3F_{y1}O_{y2}$.

이 약한 자기장하에서도 수송 임계전류밀도가 감소하는 것은 임계전류가 임계면에서 작아지면 입자내에서는 아무리 임계전류가 높다하더라도 수송 임계전류는 낮아질 수밖에 없는 것이다. 그러나 불소가 첨가된 시료들의 임계전류 밀도의 자기장 의존성은 1-2-3 상과 Y 이온에 희토류 이온들이 치환된 시료들 보다는 덜 민감함을 알 수 있었다. 이것도 불소이온의 주입이 다결정 고온초전도체의 낱알들을 크게 하고 방향성[10]을 갖게 하기 때문에 초전도성을 향상시키는 원인이 되었다.

가해준 $Y_{0.9}Yb_{0.1}Ba_2Cu_3F_{y1}O_{y2}$ 의 임계전류 밀도의 각도(θ)에 대한 의존성을 Fig. 4에 나타내었으며, Fig. 5

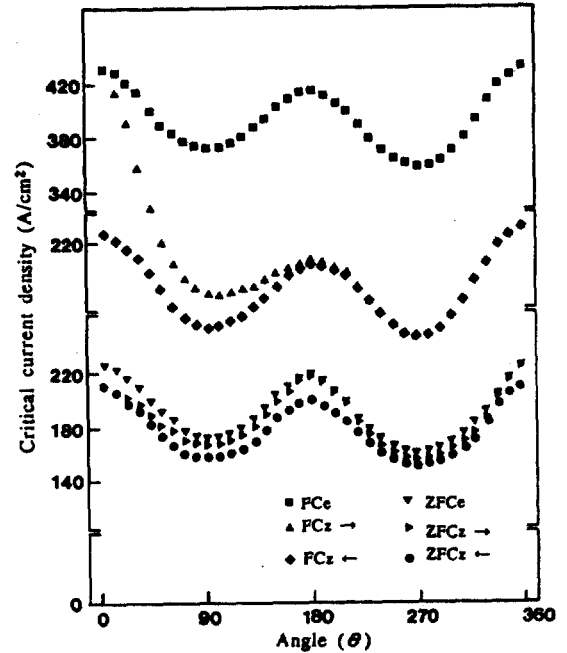


그림 4. 인가 자기장 60Oe에서 $Y_{0.9}Yb_{0.1}Ba_2Cu_3F_{y1}O_{y2}$ 계의 수송 임계전류밀도의 각도의 의존성.

(FCe, ZFCe : 자기장과 비자기장하에서 냉각 : 각각의 각도, FCz → : 0° → 360°, FCe ← : 360° → 0° 회전, ZFCz → : 0° → 360°, ZFCe ← : 360° → 0° 회전)

Fig. 4. Angle dependence of transport critical current density for $Y_{0.9}Yb_{0.1}Ba_2Cu_3F_{y1}O_{y2}$ at 60 Oe.

(FCe, ZFCe : field cooling and zero field cooling : each angle, FCz → : 0° → 360°, FCe ← : 360° → 0° rotation, ZFCz → : 0° → 360°, ZFCe ← : 360° → 0° rotation)

에는 $YBa_2Cu_3O_{7-y}$ 인 경우를 나타내었다. 이때 가해진 외부자기장(H_a)은 60 Oe이었다. Fig. 4와 Fig. 5에서 볼 수 있는 바와 같이 $J_c(FCe)$ 가 가장 높게 나타났고 $J_c(ZFCe)$ 가 가장 낮게 나타났다. 여기서 $J_c(FCe)$ 와 $J_c(ZFCe)$ 는 액체질소에 넣었다가 정해진 각도에서 측정하고 다시 상온으로 변화시킨 후 각도를 조절하고 다시 액체질소상에서 측정하는 것을 반복한 것이다.

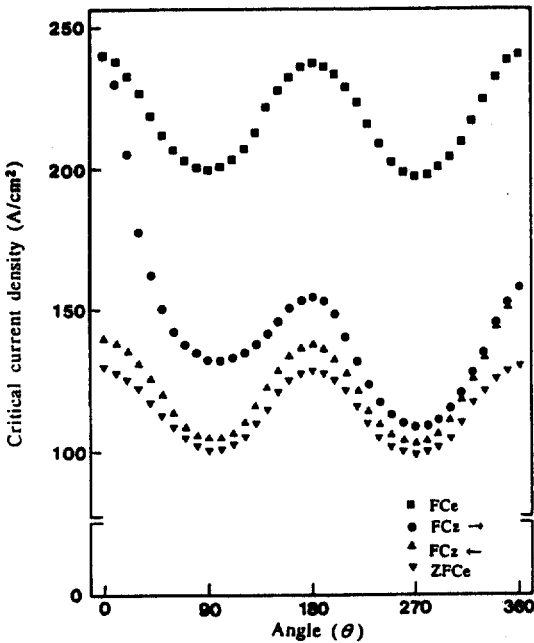


그림 5. 인가 자기장 60Oe에서 $YBa_2Cu_3O_{7-y}$ 계의 수송 임계전류밀도의 각도의 의존성. (FCe, ZFCe : 자기장과 비자기장하에서 냉각 : 각각의 각도, FCz → : 0° → 360°, FCz ← : 360° → 0° 회전)

Fig. 5. Angle dependence of transport critical current density for $YBa_2Cu_3O_{7-y}$ at 60 Oe. (FCe, ZFCe : field cooling and zero field cooling : each angle, FCz → : 0° → 360°, FCz ← : 360° → 0° rotation)

초전도체 시료에 전류 i 가 외부 자기장(H_a)의 방향과 θ 의 각도를 가지고 흐를 때 시료의 표면에는 i 에 의한 유도 자기장 $H_i = \mu_0 i / 2\pi r$ 과 반자성 효과에 의한 차폐전류에서 유도된 자기장(H_m)과 외부 자기장(H_a)의 벡터의 합으로 전체 자기장(H)이

작용되며, 시료 표면의 위치에 따라 H 의 크기가 달라지고 H 의 최대값이 $i_c(J_c)$ 를 결정하게 된다.

$Y_{0.9}Yb_{0.1}Ba_2Cu_3F_{y1}O_{y2}$ 시료에 있어서 H 의 최대값을 본 시료의 낮은 임계장 H_{c1} (102 Oe)으로 놓고 시료의 반지름 $r(0.95 \times 10^{-1} \text{ cm})$ 와 투자율 $\mu_0(4\pi \times 10^{-9} \text{ Wb/Amp-cm})$ 를 대입하여 J_c 를 계산하였다. H_a 가 60 Oe일 때 0°에서 $J_c(FCe) = 1256 \text{ A/cm}^2$, $J_c(ZFCe) = 1154 \text{ A/cm}^2$ 이며, 90°에서는 $J_c(FCe) = 640 \text{ A/cm}^2$, $J_c(ZFCe) = 513 \text{ A/cm}^2$ 으로 계산되었고 이 값들은 실제로 측정한 J_c 보다 4~10배의 값을 나타내었다. 이것은 1-2-3상의 경우와 비슷한 값이다.

각도에 따라서 $J_c(FCe)$ 가 $J_c(ZFCe)$ 보다 큰 값을 지니는 것은 weak field 하의 입자성 고온 초전도체에서는 모두 관측되는 것으로서 같은 외부자기장에 대해 각 입자 내에 pinned vortex가 FC의 경우 ZFC의 경우에 비해 많이 존재하게 되고 이로 인해 상대적으로 ZFC의 경우에는 입체간의 magnetic flux density가 FC의 경우보다 크게 되기 때문에 J_c 가 FC의 경우 보다 작게 된 것으로 볼 수 있다.

$J_c(FCz)$ 와 $J_c(ZFCz)$ 는 0°에서 360°로 돌리면서 측정한 J_c 와 다시 360°에서 0°로 돌리면서 측정한 J_c 로 구분하여 표현하였는데, $J_c(FCz)$ 와 $J_c(ZFCz)$ 의 값은 다르게 나타났다. 특히 0°~180°구간에서의 $J_c(FCz)$ 는 많은 차이를 보였고 360°~180°로의 $J_c(FCz)$ 와 $J_c(ZFCz)$ 는 약간의 차이를 나타내었는데 이것은 $YBa_2Cu_3O_{7-y}$ 와 $Y_{0.9}Yb_{0.1}Ba_2Cu_3F_{y1}O_{y2}$ 계 초전도체에서 외부 자기장이 60 Oe일 때 구속된 자기장이 FC인 경우와 ZFC인 경우 서로 비슷하기 때문이다. 그리고 시간이 지남에 따라 감소하는데 [11], $J_c(FCz)$ 의 경우 시료를 회전시키는 동안 처음에 구속된 자기장이 시료의 반자성 효과에 의하여 소거되었기 때문이며, $J_c(ZFCz)$ 의 경우에는 외부 자기장에 의한 시료의 구속된 자기장이 측정하는 동안 계속 남아 있는 것과 시료내 초전도상들이 불규칙적으로 배열되어 시료에 영향을 주었기 때문이다. 또한 0°와 180°에서 최대값을 가졌으며 최소값은 90°와 270°이었다. 이것은 시료가 냉각되면서 피닝 센터에 고착된 자속이 시료의 회전과 관계없이 일정한 반자성 자화의 벡터적으로 합해져서 나타난 것이다.

초전도체 내부의 입자간의 약한 연결이나 기공 등에 불순물과 같은 불순물이 자속에 침투하게 되면 시료에 흐르는 전류와 작용하여 로렌츠힘(Lorentz force : F_L)가 생긴다. 자기장내에 있

는 길이 1인 시료에 전류 i 가 흐를 때 로렌츠힘은 다음과 같이 나타내어진다[7].

$$F_L = ni l \phi_0 \sin \theta \quad (1)$$

여기서 n 은 자기장에 수직한 단위 면적당 소용돌이(vortex)의 수이고 ϕ_0 는 각각이 소용돌이에 침투한 자기장이며, θ 는 전류와 자기장과의 각도이다. 위 식에서 $n\phi_0$ 는 시료의 모양과 θ 와의 기하학적인 모양에 관계하는 인자이며 시료에 흐르는 전류 i 를 측정된 i_c 로 놓고 F_L 을 구한다. $YBa_2Cu_3O_{7-y}$ 와 $Y_{1-x}Yb_xBa_2Cu_3F_{y_1}O_{y_2}$ 의 자기장 방향과 로렌츠힘과의 관계를 Fig. 6과 Fig. 7에 나타내었으며, 자기장 방향의 각도는 0° 에서 부터 180° 구간까지 조사하였다. Fig. 6과 Fig. 7에서 볼 수 있듯이 로렌츠힘은 자기장의 각도 의존성을 나타내며, FCe의 경우에 자속의 침투가 가장 크게 나타났으며 ZFCe의 경우에 자속의 침투가 가장 작게 나타남을 알 수 있었고 또한 90° 에서 최대값을 가졌다.

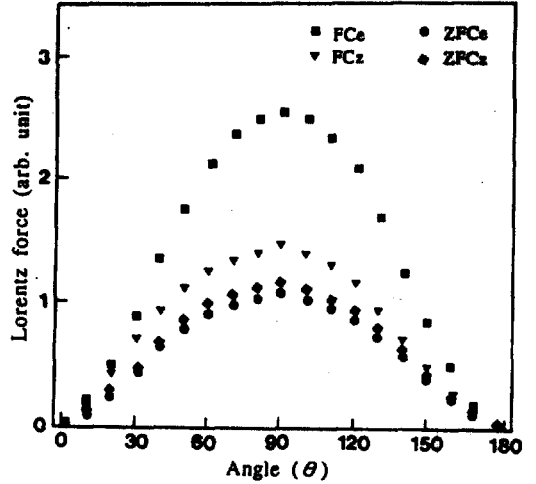


그림 7. $YBa_2Cu_3O_{7-y}$ 계의 로렌츠힘의 각도의 의존성.

Fig. 7. Angle dependence of the Lorentz force for $YBa_2Cu_3O_{7-y}$.

4. 결 론

고온 초전도체 $Y_{1-x}Yb_xBa_2Cu_3F_{y_1}O_{y_2}$ ($x=0.0, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6$)의 시료들을 제조하여 불소 주입 및 인가된 자기장 방향에 따른 수송 임계 전류밀도와 자기장 각도에 따른 로렌츠힘의 의존성에 대하여 알아보았다. 수송 임계전류밀도(J_c)는 치환 양의 변화에 따라 $82 \sim 340 \text{ A/cm}^2$ 범위에 있었고 자기장을 증가시킴에 따라 모든 시료에 대해서 수송 임계 전류밀도의 값은 대체로 급격히 감소하였다. 액체질소에 넣었다가 정해진 각도에서 측정하고 다시 상온으로 변화시킨 후 각도를 조정하고 다시 액체질소상에서 측정한 $J_c(\text{FCe})$ 와 $J_c(\text{ZFCe})$ 에서는 $J_c(\text{FCe})$ 가 가장 높게 나타났고 $J_c(\text{ZFCe})$ 가 가장 낮게 나타났다. 또한 0° 에서 360° 와 다시 360° 에서 0° 로 돌리면서 측정한 $J_c(\text{FCz})$ 와 $J_c(\text{ZFCz})$ 에서는 0° 와 180° 에서 최대값을 가졌으며 최소값은 90° 와 270° 이었다. 로렌츠힘(F_L)은 자기장의 각도 의존성을 나타내며, FCe의 경우에 자속의 침투가 가장 크게 나타났으며 ZFCe의 경우에 자속의 침투가 가장 작게 나타남을 알 수 있었고 또한 90° 에서 최대값을 가졌다.

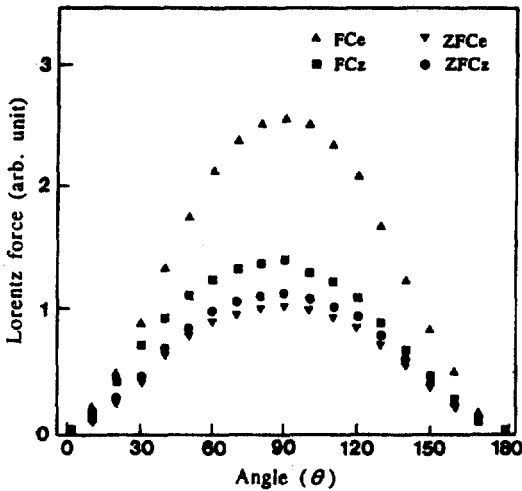


그림 6. $Y_{0.9}Yb_{0.1}Ba_2Cu_3F_{y_1}O_{y_2}$ 계의 로렌츠힘의 각도의 의존성.

Fig. 6. Angle dependence of the Lorentz force for $Y_{0.9}Yb_{0.1}Ba_2Cu_3F_{y_1}O_{y_2}$.

참 고 문 헌

1. D. E. Farrell, M. M. Fang, and N. P. Bansal, Phys. Rev. B39, 718(1989).
2. H. Kumakura et al, Jpn. Appl. Phys. 29, L1652(1990).
3. M. Naito, A. Matsuda, K. Kitazawa, S. Kambe, I. Tanaka, and H. Kojima, Phys. Rev. B41, 4823(1990).
4. S. Jin, T. H. Tiefel, R.C. Sherwood, and H. D. Keith, Phys. Rev. B37, 7850(1988).
5. K. Salama, V. Selvamanickam, and K. Sun, Appl. Phys. Lett. 54, 2352(1989).
6. M. Murakami, S. Matsuda, and H. Hamada, Proc. of 1st international symposium on superconductivity, Nagoya, 247(1988).
7. A. C. Rose-linnes, E. H. Rhoderick, "Introduction to superconductivity", 2nd ed, Chap. 7(1978).
8. C. O. Kim, E. H. Kim, P. S. Kim, and J. W. Kim, J. Basic. Scien. Hanyang Univ. 11, 91(1992).
9. C. O. Kim, E. H. Kim, J. W. Kim, and K. H. Park, J. Basic. Scien. Hanyang Univ. 11, 75(1992).
10. J. W. Kim, and C. O. Kim, Sae Mulli. 38, 433(1998).
11. M. A. Mohamed, J. Jung, and J. P. Franck, Phys. Rev. B41, 4286(1990).